(1) Veröffentlichungsnummer:

0 146 136

(l2)

# **EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT**

- (4) Veröffentlichungstag der Patentschrift: 16.05.90
- (1) Anmeldenummer: 84115603.7
- (2) Anmeldetag: 17.12.84
- Verbunden mit 85900064.8/0165270 (europäische Anmeldenummer/Veröffentlichungsnummer) durch Entscheidung vom 05.03.87.
- (§) Int. Cl.5: G 02 B 5/23, C 07 D 498/10 // G03C1/72

- (A) Optisches Element mit phototropem Überzug.
- (3) Priorität: 16.12.83 DE 3345639
- (4) Veröffentlichungstag der Anmeldung: 26.06.85 Patentblatt 85/26
- (45) Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung: 16.05.90 Patentblatt 90/20
- (M) Benannte Vertragsstaaten: AT BE CH DE FR GB IT LI LU NL SE
- 56 Entgegenhaltungen:

EP-A-0 082 115 GB-A-1 092 124 DE-A-1 927 849 GB-A-1 105 825 GB-A-1 146 309 DE-A-2 746 131 DE-A-2 826 255 GB-A-2 029 410 US-A-3 397 023 FR-A-1 391 063

US-A-3 409 556

GB-A-1 092 123

Die Akte enthält technische Angaben, die nach dem Eingang der Anmeldung eingereicht wurden und die nicht in dieser Patentschrift enthalten sind.

- (73) Patentinhaber: Optische Werke G. Rodenstock Isartalstrasse 43 D-8000 München 5 (DE)
- (72) Erfinder: Melzig, Manfred, Dr. Sonnenstrasse 11 D-8031 Wessling (DE) Erfinder: Martinuzzi, Guiseppe Wendelsteiner Strasse 4 D-8031 Eichenau (DE) Erfinder: Effer, Erhard Ministerhügel 6 D-8134 Pöcking (DE)
- (14) Vertreter: Münich, Wilhelm, Dr. et al Kanzlei Münich, Steinmann, Schiller Willibaldstrasse 36/38 D-8000 München 21 (DE)

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents im Europäischen Patentblatt kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

#### Beschreibung

25

30

Die Erfindung bezieht sich auf ein optisches Element mit einem phototropen Überzug, wie es beispielsweise als Sonnenschutz-Brillenglas verwendet werden kann.

Optische Elemente mit phototropen Überzügen, d.h. Überzügen, deren Einfärbung sich entsprechend der Umgebungsbeleuchtung in Intensität und Farbeindruck ändert, sind beispielsweise aus der DE—A 29 36 255 bekannt.

In dieser Druckschrift sind zwei Wege beschrieben, wie ein phototroper Überzug auf einem optischen Element aufgebracht werden kann. Nach dem einen Verfahren wird eine Mischung aus der phototropen Substanz und einem optisch klaren Kunststoffmaterial, wie es auch für Kunststofflinsen verwendet wird, hergestellt und diese Mischung auf dem optischen Element aufgebracht. Bei dem anderen beschriebenen Verfahren wird die phototrope Substanz zunächst in einem Lösungsmittel gelöst; anschließend wird das optische Element mehrere Stunden in die Lösung eingetaucht.

Nachteilig bei den gemäß der DE—A 29 36 255 aufgebrachten Überzügen ist, daß die Überzüge entweder langwierig herzustellen sind, schlecht haften und/oder die optische Qualität des optischen Elements herabgesetzt wird.

Weiterhin ist es aus der GB—A 1 105 825 bekannt, photochrome Substanzen in thermoplastische Silane einzulagern.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein optisches Element mit einem eine oder mehrere phototrope organische Substanz(en) enthaltenden durchsichtigen Überzug derart weiterzubilden, daß der einfach aufbringbare Überzug gut haftet und die optische Qualität des Elements nicht verschlechtert.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß der Überzug aus Polysiloxanschutzlack besteht. Der Schutzlack kann dabei auf die Vorder- und Rückseite des optischen Elements oder nur auf eine Seite aufgebracht sein.

Polysiloxanlacke werden üblicherweise als Schutzlacke zum Schutz von Kunststoffgläsern gegen mechanische und/oder sonstige Einwirkungen verwendet. Hierdurch ergibt sich der Vorteil, daß zum Aufbringen des phototropen Überzugs bei Kunststoffgläsern kein zusätzlicher Arbeitsgang erforderlich ist; vielmehr erhält das optische Element, beispielsweise ein Brillenglas, den phototropen Überzug durch das Aufbringen des beispielsweise zum Schutz gegen äußere Einwirkungen erforderlichen Schutzlacks.

Der erfindungsgemäß verwendete Polysiloxanlack hat vor allem aber folgenden Vorteil:

Die Eigenschaften phototroper Verbindungen, wie beispielsweise Sättigungstransmission, Kinetik der Eindunkelung und Aufhellung, Temperaturabhängigkeit und Lebensdauer des phototropen Effekts, Transmission im aufgehellten Zustand und auch der Farbeindruck hängen in starkem Maße von der chemischen Umgebung der phototropen Verbindungen, d.h. der Matrix ab, in die phototrope Substanzen eingebracht sind.

Damit ist es erfindungsgemäß möglich, durch Variation der phototropen Substanzen und/oder des Polysiloxanschutzlacks, in den die phototropen Verbindungen eingebracht sind, verschiedene Einfärbungen und/oder eine unterschiedliche Kinetik der Aufhellung und Verdunklung zu erzielen.

Überraschenderweise haben dabei viele phototrope Substanzen, wenn sie erfindungsgemäß in einen Polysiloxanlack eingebracht werden, eine größere Lebensdauer hinsichtlich des phototropen Effekts und eine schnellere Kinetik, als beim Einbringen beispielsweise in das Kunststoffmaterial des optischen Elements.

Weiterbildungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen angegeben.

Im Anspruch 2 sind verschiedene vorteilhafte Polysiloxane, nämlich Epoxy-, Acryloyl-, Alkoxy- oder Alkyalkoxysiloxan angegeben.

Durch die Wahl unterschiedlicher Lacksorten sowie durch die verschiedenen im Anspruch 3 angegebenen Einbringverfahren ist es möglich, bei gleicher phototroper Verbindung ein unterschiedliches Ansprechverhalten und sogar einen unterschiedlichen Farbeindruck zu erzielen.

Darüberhinaus ist es möglich, beispielsweise durch Härtung des Lacks mit ionisierender Strahlung, in Gegenwart von Initiatorsystemen oder durch Photoinitiatoren sowie durch Wärmeeinwirkung bzw. UV-Strahlung die Matrix der phototropen Verbindung und damit die Eigenschaften der phototropen Verbindung, beispielsweise hinsichtlich der Kinetik der Einfärbung, Lebensdauer, Sättigungstransmission, Farbe etc. zu beeinflussen.

Insbesondere ist es gemäß Anspruch 4 möglich, dem Polysiloxanlack Stabilisatoren beizufügen, die eine photooxidative und/oder eine photolytische Alterung bzw. Zerstörung der in den Lack und/oder das optische Element eingebrachte phototropen Verbindungen beispielsweise durch den Luftsauerstoff und/oder UV-Strahlen verhindern oder zumindest hinauszögern. Die Stabilisatoren können dabei UV-Absorber der üblichen Art, wie Benzophenon-, Benzotriazol-Acrylsäurederivate sein. Ferner können beispielsweie die in der DE—A—33 10 388 beschriebenen Stabilisatoren verwendet werden.

Der erfindungsgemäß ausgebildete Überzug kann sowohl bei optischen Elementen aus einem Kunststoffmaterial als auch bei Elementen aus Silikatglas eingesetzt werden (Anspruch 5).

Natürlich können als phototrope bzw. photochrome Verbindungen bzw. Substanzen die verschiedensten Verbindungen verwendet werden, wie sie beispielsweise in den US-PSen 3 562 172 und 3 578 602 oder in der DE—A 29 36 255 beschrieben sind. Besonders vorteilhaft hinsichtlich Temperaturstabilität und Lebensdauer sind jedoch die im Anspruch 6 angegebenen phototropen Verbindungen.

Gemäß Anspruch 7 kann der Lack mehrere Schichten aufweisen, deren phototrope Färbung unterschiedlich sein kann. Hierdurch können Mischfarben und/oder farbige Muster erzeugt werden. Zusätzlich können auch in das optische Element ein oder mehrere phototrope Substanzen eingebracht sein.

Erfindungsgemäß ist nämlich erkannt worden, daß zum Erzielen beispielsweise einer kosmetischen ansprechenden neutral-grauen oder braunen Einfärbung phototroper Brillengläser mindestens zwei verschiedene Substanzen erforderlich sind, deren physikalische Eigenschaften so aufeinander abgestimmt sein müssen, daß während der Aufhell- bzw, Eindunkelungsphase keine Farbunterschiede sichtbar werden. Diese Anpassung des Gesamtsystems an die gewünschte Eigenschaften kann — wie ebenfalls erfindungsgemäß erkannt worden ist — durch geeignete Wahl und/oder Variation der jeweiligen Matrix, in die die verschiedenen phototropen Substanzen eingebettet sind, erfolgen.

Das optische Element und/oder der Überzug können ferner zusätzlich in an sich bekannter Weise nichtphototrop eingefärbt sein. Beispielsweise kann, wenn das optische Element ein Brillenglas ist, das Glas nicht optisch klar, sondern mit einer bestimmten "Anfangsabsorption" versehen sein.

Natürlich können sowohl die phototrope als auch die nichtphototrope Einfärbung homogen oder partiell verlaufend sein. Insbesondere bei Sonnenschutzgläsern kann die Einfärbung dabei graduell verlaufend sein und zwar beispielsweise so, daß die Einfärbung vom oberen Rand des Glases nach unten hin abnimmt. Bei photroper graduell verlaufender Einfärbung können die phototropen bzw. photochromen Substanzen entweder in dem Überzug oder in dem optischen Element selbst graduell verlaufend

Die Erfindung wird nachstehend anhand von Vergleichen mit optischen Elementen, deren phototrope Wirkung auf herkömmliche Weise erzeugt worden ist, näher erläutert.

### Vergleich 1

Planglasscheiben aus CR 39 mit einer Dicke von 2 mm sind mit der aus der US-A-2 953 454 bekannten phototropen Substanz 1,3,3-Trimethyl-8'-methoxy-6'nitro-2'H-1'benzopyran einmal in konventioneller Tauchfärbung (analog DE-A-2 347 018) und einmal mit einem erfindungsgemäßen Überzug auf Polysiloxanbasis mit einer Schichtdicke von ca 3 µm phototrop eingefärbt worden.

Die nachstehende Tabelle gibt die Veränderung der optischen Dichte OD (V<sub>λ</sub>-bewertet) sowie die Halbwertszeit HWZ der Aufhellung bei verschiedenen Temperaturen nach einer 15-minütigen Belichtung mit einer 150 W XBO-Lampe mit einer Beleuchtungsstärke von 50 klux wieder:

Temperatur	Tauci OD	nfärbung HWZ	Phototr OD	oper Lack HWZ
14°C	0.172	>240 min	0.261	30 min
23°C	0.202	>80 min	0.299	10 min
30°C	0.146	26 min	0.222	3,5 min

Trotz kleinerer Veränderungen der optischen Dichte des mit konventioneller Tauchfärbung hergestellten optischen Elements benötigt die phototrope Substanz im Falle der üblichen Diffusionsfärbung des CR 39-Materials über acht mal solange, um auf die halbe Verdunkelung aufzuhellen als bei der erfindungsgemäßen Einbringung.

#### Vergleich 2

Planglasscheiben aus CR 39 mit einer Dicke von 2 mm sind mit der aus der US—A 3 578 602 bekannten Substanz 1,3,3-Trimethyl-Spiro(indolin-2, 3'naphth(2,1-6)(1,4)-oxazin) einmal konventioneller Tauchfärbung (analog US-A-3 578 602) und einmal mit einem erfindungsgemäßen Überzug auf Polysiloxanbasis mit einer Schichtdikke von ca 3 µm phototrop eingefärbt worden.

Die nachstehende Tabelle gibt die Verdunkelung und Aufhellung bei 5°C wieder. Dabei wurde während einer 15-minütigen Belichtung eine Beleuchtungsstärke von 50 klux eingehalten. Die angegebenen Transmissionswerte sind V<sub>x</sub>-bewertet.

55

20

25

35

40

60

65

Verdunkelung (Belichtungszeit)	Transmission bei Tauchfärbung phototroper Lack		
0	92%	88,5%	
3Ø sec	63%	45%	
1 min	60%	36%	
<2 min	51%	32%	
5 min	42%	29,5%	
15 min	35%	28,5%	
Aufhellung (Aufhellzeit)	Transmission bei Tauchfärbung phototroper Lack		
30 sec	40%	45%	
1 min	43,5%	56,5%	

47%

55,5%

67,5%

67,5%

78,5%

>85%

2 min

5 min

15 min

30

35

5

10

15

20

25

In einer Minute werden bei der erfindungsgemäßen Einfärbung, bei der die phototrope Substanz in einen Lack eingebracht wird, über 94% der maximalen Verdunkelung erreicht, bei konventioneller Färbetechnik dagegen nur 56%. Auch die Aufhellung ist bedeutend schneller, eine Aufhellung auf 70% der maximalen Transmission wird bereits in 2,5 Minuten statt erst in 20 Minuten erreicht.

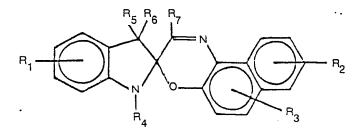
Der Vorteil der erfindungsgemäßen Einbringung phototroper Substanzen liegt darin, daß bereits bekannte phototrope Verbindungen als Sonnenschutzfilter überhaupt oder auch bei tiefen Temperaturen Verwendung finden können.

### Patentansprüche

40

45

- 1. Optisches Element mit einem eine oder mehrere phototrope organische Substanz(en) enthaltenden durchsichtigen Überzug, dadurch gekennzeichnet, daß der Überzug aus Polysiloxanschutzlack besteht.
- Element nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Polysiloxan ein Epoxy-, Acryloyl-, Alkoxy- oder Alkyalkoxysiloxan ist.
- 3. Element nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Überzug durch Einbringen der phototropen organischen Substanz(en) in den Lack in Lösung und/oder nach dessen vollständigem oder teilweisen Aushärten hergestellt worden ist.
- 4. Element nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Lack einen oder mehrere Stabilisatoren aufweist, die eine photolytische und/oder eine photooxidative Zerstörung des phototropen Substanz(en) verhindern oder hemmen.
- 5. Element nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das optische Element aus Diethylenglykol-bis-allylcarbonat, Polycarbonat, Polymethacrylat oder Silikatglas besteht.
- 6. Element nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die organische(n) phototrope(n) Substanz(en) ausgewählt ist (sind) aus der Gruppe bestehend aus 1,3,3-Trimethyl-8'-methoxy-6'-nitro-2'H-1'-benzopyran sowie Substanzen der allgemeinen Formel



65

60

ist, wobei

5

10

3.5

40

 $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$  aus der Reihe —H, —CN, —SCN, — $NO_2$ , — $X_1$ , — $CH_2X$ , — $CX_3$  (X = Halogen), —OR, —SR, -COR, ---COOR mit X = Halogen und R = H, Alkyl mit bis zu 8 C-Atomen, Aryl oder Heteroaryl, ausgewählt

und  $R_4$ ,  $R_5$ ,  $R_6$ ,  $R_7$  jeweils die Bedeutung —H, —R, — $CH_2R$ , — $NH_2R$ , — $NR_2$ , —OR, —SR mit R = Alkylrestmit bis zu 8 C-Atomen, Aryl-oder Heteroaryl besitzen wobei mindestens einer der Reste R4, R5 oder R6 nicht Methyl ist, falls  $R_7 = H$  ist.

7. Element nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Überzug mehrere

Lackschichten mit unterschiedlicher phototroper Färbung aufweist.

8. Verwendung eines optischen Elements nach einem der Ansprüche 1 bis 8 als Sonnenschutz-Brillenglas.

#### Revendications

1. Elément optique revêtu d'un couche transparente, qui contient une ou plusieurs substances organiques phototropiques, élément caractérisé en ce que la couche de revêtement est composée d'un vernis protecteur en polysiloxane.

2. Elément optique selon la revendication 1, caractérisé en ce que le polysiloxane est un époxy-,

acryloyl-, alcoxy- ou alkylalcoxysiloxane.

3. Elément selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que la couche de revêtement a été obtenue par apport, dans le vernis, de la ou des substances organiques phototropiques en solution et/ou après durcissement complet ou partiel de ce vernis.

4. Elément selon l'une des revendications 1 à 3, caractérise en ce que le vernis contient un ou plusieurs stabilisants, qui empèchent ou inhibent la destruction de la ou des substances phototropiques par

photolyse et/ou photo-oxydation.

5. Elément selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que cet élément optique est un bis(allylcarbonate) de diéthylèneglycol, un polycarbonate, un polyméthacrylate ou un verre au silicate.

6. Elément selon l'une des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que la ou les substance(s) organique(s) phototropique(s) est ou sont choisie(s) parmi le 1,3,3-triméthyl-8'-méthoxy-6'-nitro-2'H-1'benzopyranne ou les substances ayant la formule générale

où  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$  sont choisis parmi —H, un groupe —CN, —SCN, —NO<sub>2</sub>, —X, —CH<sub>2</sub>X, —CX<sub>3</sub> (X = halogène), —OR, —SR, —COR, —COOR (avec X = halogène et R représentant H, un groupe alkyle ayant 45 jusqu'à 8 atomes de C, un groupe aryle ou hétéroaryle)

et  $R_4$ ,  $R_5$ ,  $R_6$ ,  $R_7$  ont comme significations —H, —R, — $CH_2R$ , — $NH_2R$ , — $NR_2$ , —OR, —SR, R étant un radical alkyle contenant jusqu'à 8 atomes de C, un groupe aryle ou hétéroalkyle, et l'un au moins des radicaux R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub> ou R<sub>6</sub> ne représentant pas un groupe méthyle, si R<sub>7</sub> représente H.

7. Elément selon l'une des revendications 1 à 6, caractérisé en ce que le revêtement présente plusieurs couches de vernis à coloration phototropique différente.

8. Utilisation d'un élément optique selon l'une des revendications 1 à 7 comme verre pour lunettes de protection contre les effets du soleil (lunettes de soleil).

#### Claims

55

60

1. Optical element with a translucent coating containing one or more photochromic, organic substance(s), characterised by the fact that the coating comprises a polysiloxane protective lacquer.

2. Element according to claim 1, characterised by the fact that the polysiloxane is an epoxy, acryloyl,

alkoxy or alkyakoxy siloxane.

3. Element according to claim 1 or 2, characterised by the fact that the coating has been manufactured by introduction of the photochromic, organic substance(s) into the lacquer in solution and/or after its complete or partial hardening.

4. Element according to any of the claims 1 to 3, characterised by the fact that the lacquer comprises one or more stabilisers which prevent or inhibit a photolytic and/or a photooxidising destruction of the

photochromic substance(s).

5. Element according to any of the claims 1 to 4, characterised by the fact that the optical element comprises diethylene glycol bis allylcarbonate, polycarbonate, polymethacrylate or silicate glass.

6. Element according to any of the claims 1 to 5, characterised by the fact that the organic photochromic substance(s) is/are selected from the group consisting of 1,3,3-trimethyl-8'-methoxy-6'-nitro-2'H-1'-benzopyrane and of substances of the general formula

$$R_1$$
 $R_2$ 
 $R_3$ 
 $R_4$ 

where

R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub> are selected from the series —H, —CN, —SCN, —NO<sub>2</sub>, —X, —CH<sub>2</sub>X, —CX<sub>3</sub> (X = halogen), OOR, —SR, —COR, —COOR with X = halogen and R = H, alkyl with up to 8 C atome, aryl or heteroaryl and R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>, R<sub>7</sub> in each case have the meaning —H, —R, —CH<sub>2</sub>R, —NH<sub>2</sub>R, —NR<sub>2</sub>, —OR, —SR with R = alkyl residue with up to 8 C atoms, aryl or heteroaryl where at least one of the residues R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, or R<sub>6</sub> is not methyl if R<sub>7</sub> = H.

7. Element according to any of the claims 1 to 6, characterised by the fact that the coating possesses several lacquer layers with different photochromic tinting.

8. Use of an optical element according to any of the claims 1 to 8 as a sun-protection spectacle lens.

(11) Publication number: 0 146 136

**B1** 

# **European Patent**

(45) Date of publication of the patent: 16 May 1990

(67) Int. Cl.<sup>5</sup>: **G** 02 **B** 5/23 C 07 D 498/10 //

G03C1/72

(21) Application Number:

84115603.7

(12) Date of Application:

17 December 1984

(illegible) Combined with 85900064.8/0165270 (European application number / publication number) by decision of 5 March 1987.

# (54) Optical element with photochromic coating

(30) Priority:

(73) Patent owner:

16 December 1983 German 3345639

Optische Werke G. Rodenstock

Isartalstrasse 43

D-8000 Munich 5 (Germany)

(43) Date of publication of the application: (72) Inventors:

26 June 1985, Patent Gazette 85/26

Dr. Manfred Meizig

Sonnenstrasse 11

(45) Publication of the notice of patent issuance: 16 May 1990,

D-8031 Wessling (Germany) Guiseppe Martinuzzi

Patent Gazette 90/20

Wendelsteiner Strasse 4 D-8031 Eichenau (Germany)

(81) Specified contracting states:

AT BE CH DE FR GB IT LI LU NL SE

Erhard Effer Ministerhügel 5

D-8134 Pöcking (Germany)

(56) Prior art documents:

EP-A-0 082 115 GB-A-1-092 134

DE-A-1 927 849 GB-A-1 105 825

DE-A-2 746 131 GB-A-1-146 309

DE-A-2 826 255 GB-A-2 029 410

FR-A-1 391 063 USA 3,397,023

GB-A-1 092 123 USA 3,409,556

(74)Attorneys:

> Dr. Wilhelm Münich et al. Willibaldstrasse 36/38

D-8000 Munich (Germany)

The file contains technical data submitted after receipt of the application which are not included in this patent.

Note: Within nine months after publication of the notice of issuance of the European Patent in the European Patent Gazette, anyone may submit an objection to the European Patent issued at the European Patent Office. The objection must be submitted in writing and must be explained. It will be considered submitted only when the objection fee has been paid (Art. 99(1), European Patent Convention.

Courier Press, Learnington Spa, England

## Description

The invention concerns an optical element with a photochromic coating such as can be used for sunglasses, for instance.

Optical elements with photochromic coatings, i. e., coatings with which the color and intensity of the dye change depending on the ambient illumination, are known, for instance from German Patent Application DE-A 29 38 255.

That patent describes two ways in which a photochromic coating can be applied to an optical element. In one process, a mixture of the photochromic substance and an optically clear plastic, such as is used for plastic lenses, is prepared and that mixture is applied to the optical element. In the other process described, the photochromic substance is first dissolved in a solvent, and then the optical element is immersed in the solution for several hours.

The coatings applied according to DE-A 29 36 255 have the disadvantage that production of the coating is time-consuming, the coatings adhere poorly, and/or the optical quality of the optical element is impaired.

Deposition of photochromic substances in thermoplastic silanes is also known from G-A 1 105 925.

The invention is based on the objective of developing an optical element with a coating containing one or more photochromic organic substance(s) such that the coating is simple to apply, adheres well, and does not impair the optical quality of the element.

This objective is achieved according to the invention by the fact that the coating is a polysiloxane protective coating. The protective coating can be applied to the front and back of the optical element, or to just one side.

Polysiloxane coatings are usually applied as protective coatings to protect plastic glasses against mechanical and/or other effects. Here they have the advantage that no additional process is needed to apply the photochromic coating to plastic glasses. Instead, the optical element, such as a spectacle lens, is given the photochromic coating by applying the protective coating used, for instance, for protection from external effects.

The polysiloxane coating used according to the invention has the following major advantage:

The properties of photochromic compounds, such as their saturation transmission, the rate of darkening and lightening, the temperature dependence, and the lifetime of the photochromic effect, the transmission in the lightened state, and the apparent color, depend strongly on the chemical environment of the photochromic compounds, i.e., on the matrix in which the photochromic substances are applied.

Thus it is possible according to the invention to produce different colors, and/or different rates of darkening and lightening by varying the photochromic substances and/or the polysiloxane coating in which the photochromic compounds are applied.

Surprisingly, many photochromic substances, when applied in a polysiloxane coating according to the invention, have greater lifetimes for the photochromic effect and faster kinetics than when they are included in the plastic material of the optical element, for example.

Further developments of the invention are stated in the subclaims.

Claim 2 discloses various advantageous polysiloxanes, specifically, epoxy, acryloyl, alkoxy or alkylalkoxy silanes.

It is possible, by selecting different types of coatings and by the various application procedures described in Claim 3, to attain difference response behaviors and even different color appearances with the same photochromic compound.

It is also possible to affect the matrix of the photochromic compound, and thus the properties of the photochromic compound, for instance, with respect to the rate of darkening, the lifetime, saturation transmission, color, etc., by, for instance, curing the coating with ionizing radiation, in the presence of initiator systems, or by photoinitiators, as well as by action of heat or UV radiation.

In particular, it is possible according to Claim 4 to include in the polysiloxane coating stabilizers which prevent, or at least delay, photooxidative and/or photolytic aging or destruction of the photochromic compounds in the coating and/or the optical element, such as by air oxygen and/or UV radiation. The stabilizers can be UV absorbers of the usual type, such as benzophenones, or benzotriazole-arcylic acid derivatives. Also, for example, the stabilizers described in DE-A 33 10 988 can be used.

The coating developed according to the invention can be used both with optical elements made from a plastic material and with optical elements made from silicate glass (Claim 5).

Of course, quite varied compounds such as those described in the US patents 3,562,172 and 3,578,602, or in DE-A 29 36 255, can be used as photochromic compounds or substances. However, the photochromic compounds listed in Claim 6 are particularly advantageous with respect to temperature stability and lifetime.

According to Claim 7, the coating can have several layers in which the photochromic dye can be different. Mixed colors and or color patterns can be produced in this manner. In addition, one or more photochromic substances can also be made part of the optical element.

That is, it is known according to the invention that at least two different substances are needed to produce a cosmetically suitable neutral gray or brown coloration in photochromic spectacles. Their physical properties must be matched so that no color differences appear during the darkening or lightening phases. The total system can be matched to the desired properties — as also disclosed by the invention — by suitable choice and/or variation of the particular matrix in which the various photochromic substances are embedded.

The optical element and/or the coating can also be dyed non-photochromically in a manner which is itself known. For example, if the optical element is a spectacle lens, the glass may not be optically clear, but have a certain "initial absorbance".

Of course, both the photochromic and the non-photochromic dye can be homogeneous or partially directional. For sunglasses in particular, the dye can be directionally graduated and particularly so that the intensity decreases from the upper edge of the lens downward. For photochromically directionally graduated coloration, the photochromic or photochromic substances can be applied in a directional graduation either in the coating or in the optical element itself.

The invention is explained in more detail below by means of comparisons with optical elements having photochromic action produced in the usual manner.

# Comparison 1

Plane glass disks of CR 39, 2 mm thick, were dyed photochromically with the photochromic substance 1,3,3-trimethyl-8'-methoxy-6'-nitro-2'H-1'-benzopyran, once with the conventional dip staining procedure (analogous to DE-A 2 347 018), and once with a polysiloxane-based coating about 3 µm thick according to the invention. [See translator's note 2]

The table below shows the change in the optical density, OD (according to  $V_{\lambda}$ ) and the half time for lightening at different temperatures, after a 15-minute exposure to a 150 W XBO lamp with an illumination intensity of 50 klux:

	Dip staining		Photochromic coating	
Temperature	OD	Half-time	OD	Half-time
14 °C	0.172	> 240 min	0.261	30 min
23 °C	0.202	> 80 min	0.299	10 min
30 °C	0.146	26 min	0.222	3.5 min

Even though the change of optical density was less with optical elements produced by the conventional dip procedure, the photochromic substance required more than eight times as long to achieve half its darkening for the usual diffusion staining of the CR 39 material than with the application according to the invention.

# Comparison 2

Plane glass disks of CR 39, 2 mm thick, were dyed photochromically with the substance 1,3,3-trimethyl-spiro(indolin-2,3'-naphtho(2,1-6)(1,4)oxazine) by the conventional dipping procedure (analogous to US patent 3,578,602) and by a polysiloxane-based coating according to the invention, with a coating thickness of about 3  $\mu$ m.

The table below shows the darkening and lightening at 5 °C. In this test, an illumination intensity of 50 klux was maintained for a 15-minute exposure. The transmission values reported are evaluated by  $V_{\lambda}$ .

Darkening	Transmission with		
(exposure time)	Dip staining	Photochromic coating	
0	92%	88.5%	
30 sec	63%	45%	
1 min	60%	36%	
< 2 min	51%	32%	
5 min	42%	29.5%	
15 min	35%	28.5%	
Lightening	Transmission with		
(lightening time)	Dip staining	Photochromic coating	
30 sec	40%	45%	
1 min	43.5%	56.5%	
2 min	47%	67.5%	
5 min	55.5%	78.5%	
15 min	67.5%	> 85%	

More than 94% of the maximum darkening was achieved in 1 minute with staining by the process according to the invention, with the photochromic substance in a coating. With the conventional coloring process, on the other hand, only 56% of the darkening was achieved. In addition, the lightening is significantly faster. Lightening to 70% of the maximum transmission was achieved in only 2.5 minutes, while the conventional process lightened to that extent only in 20 minutes.

The advantage of applying the photochromic substances according to the invention is that already known photochromic compounds can be used at all as solar protection filters, or used at low temperatures.

### Translator's notes:

- 1. "Phototropic": this German term is not "phototropic" in English, and probably not in German -- that word refers to growth of plants in the direction of light. The English term is "photochromic". The German text uses "phototropic bzw. photochromic" ("phototropic or photochromic) on page 2, line 62 and page 3, line 17. They are used synonymously, and I omitted the redundant "or photochromic".
- 2. In Comparisons 1 and 2 (German p. 3, English p. 5-6), the German text literally says that the glass disks are stained "once with the conventional dip staining procedure... and once with a... coating... according to the invention.", as translated. That could be taken to mean that a disk is stained successively with the two processes. However, the actual meaning appears to be that one disk, or one set of disks, was treated with the one procedure and another with the other procedure.
- 3. Comparison 1:
  I retained the term "optical density" with the abbreviation "OD", but for many years the accepted term has been "absorbance", "A".

  The "half-time" is not defined here, but from the last paragraph of Comparison 1, it must mean the time required for 50% of the change.
- 4. Comparison 2: I used several English words to translate the "statt erst" in the last line of the paragraph immediately below the table. I believe they are implied, though not literally stated, in the German.